

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-354949

(43)Date of publication of application : 25.12.2001

---

(51)Int.Cl.

C09K 3/10  
C03C 27/06  
// C08L 51/06

---

(21)Application number : 2000-175214

(71)Applicant : YOKOHAMA RUBBER CO LTD:THE

(22)Date of filing : 12.06.2000

(72)Inventor : TAKEYAMA SHUICHI  
IGAWA KATSUHIRO  
WATANABE JIRO

---

(54) SEALING AGENT COMPOSITION AND DOUBLE GLAZING USING THE SAME

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a sealing material composition which does not need a metal spacer or a secondary sealing material in preparing a double glazing, does not need the use of a primer or an adhesive resin, and is especially useful as a sealing material, and to provide a double glazing the production process of which is greatly simplified because of the use of the composition as a sealing material.

SOLUTION: This sealing material composition comprises a continuous phase formed from a non-crystalline polyolefin to which a silane compound having hydrolyzable silyl groups has been grafted and a disperse phase formed from a thermoplastic resin and/or an elastomer and has a moisture permeability of 200 g/m<sup>2</sup>.24h or lower (30 μm thickness).

---

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-354949

(P2001-354949A)

(43) 公開日 平成13年12月25日 (2001. 12. 25)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テ-マコ-ト (参考)
C 0 9 K 3/10		C 0 9 K 3/10	G 4 G 0 6 1
			Z 4 H 0 1 7
C 0 3 C 27/06	1 0 1	C 0 3 C 27/06	1 0 1 Z 4 J 0 0 2
// C 0 8 L 51/06		C 0 8 L 51/06	

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 12 頁)

(21) 出願番号 特願2000-175214 (P2000-175214)

(22) 出願日 平成12年6月12日 (2000. 6. 12)

(71) 出願人 000006714

横浜ゴム株式会社

東京都港区新橋5丁目36番11号

(72) 発明者 武山 秀一

神奈川県平塚市追分2番1号 横浜ゴム株式会社平塚製造所内

(72) 発明者 井川 勝弘

神奈川県平塚市追分2番1号 横浜ゴム株式会社平塚製造所内

(74) 代理人 100080159

弁理士 渡辺 望稔 (外1名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 シーリング剤組成物およびそれを用いた複層ガラス

(57) 【要約】

【課題】 複層ガラスにおいて、金属スペーサーや二次シール材を必要とせず、また、プライマーや接着樹脂の使用を必要としない、シール材として特に有用なシーリング材組成物、および、該シーリング材組成物をシール材として用いることで、製造工程が大幅に簡略化される複層ガラスの提供。

【解決手段】 連続相が、加水分解性シリル基を有するシラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンであり、分散相が、熱可塑性樹脂および／またはエラストマーであり、透湿度が、 $200\text{ g/m}^2 \cdot 24\text{ h}$ 以下 ( $30\text{ }\mu\text{m}$ 厚さ) であるシーリング材組成物。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】連続相が、加水分解性シリル基を有するシラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンであり、分散相が熱可塑性樹脂および／またはエラストマーであり、透湿度が、 $200\text{ g/m}^2 \cdot 24\text{ h}$ 以下（ $30\text{ }\mu\text{m}$ 厚さ）であるシーリング材組成物。

【請求項2】前記分散相が、熱可塑性樹脂連続相中に、少なくとも一部が動的に架橋されたエラストマー組成物からなる分散相を有する熱可塑性エラストマー組成物である請求項1に記載のシーリング材組成物。

【請求項3】前記シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンと前記熱可塑性樹脂および／またはエラストマーとの重量比が、 $30:70 \sim 70:30$ である請求項1または2に記載のシーリング材組成物。

【請求項4】前記シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンが、ポリオレフィンに対するシラン化合物のグラフト率が $0.1 \sim 10$ 重量%である請求項1～3のいずれかに記載のシーリング材組成物。

【請求項5】さらに吸湿剤を含む請求項1～4のいずれかに記載のシーリング材組成物。

【請求項6】請求項1～5のいずれかに記載のシーリング材組成物をシーリング材且つスペーサーとして用いた複層ガラス。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、接着性、耐水蒸気透過性に優れるシーリング材組成物、および、該組成物をシーリング材且つスペーサーとして使用した複層ガラスに関する。

【0002】

【従来の技術】現在の複層ガラスの多くは、最低2枚のガラス板をアルミニウム製等の金属スペーサーを介して対向させ、ガラス板の間に中空層（空気層）を形成し、スペーサーとガラス板の間に一次シールを介在させて空気層を外気から遮断し、さらにスペーサー、一次シールと、対向するガラス板とで囲む空隙に、ポリサルファイド系あるいはシリコン系で代表される2液混合型で常温硬化型の二次シールを打設して形成される。これまで、複層ガラスの製造方法は、まず、乾燥剤を中空を有するスペーサーの中空部分に充填してスペーサーを組み立て、ガラス板間にスペーサーを配設してガラス板間の幅を所定間隔にセットし、その後、シーリング材を打設するという方法がとられている。このように作業工程は煩雑であり、さらに、常温硬化型のシーリング材を用いる複層ガラスでは、シーリング材が硬化するまで長時間かかり、製品がすぐ出荷できなかった。特に冬季では、養生のために加温室に入れる必要があった。このため、複層ガラスの製造工程を簡略化し、養生時間を短縮して、生産性を改善することが求められている。

【0003】これに対し、アルミニウム製スペーサーの

代わりに必要に応じて乾燥剤を練りこんだシーリング材組成物をスペーサー兼シーリング材として用いる発明

が、特開平10-110072号公報等で提案されている。このシーリング材組成物は、ブチル系ゴム50～98重量%と結晶性ポリオレフィン2～50重量%とを含み、好ましくは高温下で混合されてなる組成物である。

この組成物を用いた複層ガラスでは、組成物が樹脂スペーサーと共にシーリング材としての役割も果たし、組成物を対向配置された複層ガラス材料の端部に打設して、

- 10 スペーサーを有し対向するガラス板端部がシールされた複層ガラスを製造でき、製造工程が簡略化される。しかし、該組成物はプライマーを用いなければガラスに接着しないという問題点を持っている。さらに、該組成物を樹脂スペーサーとして用いた複層ガラスは、常温ではガラス板に荷重をかけてもガラス板がずれるといったことはないが、該組成物がゴム中に少量の樹脂を含む組成物であるため高温下で熱変形しやすく、特に複層ガラス製造時に、高温のシーリング材を打設しシーリング材を硬化させている間にガラス板がずれてしまう、あるいは、
- 20 建築材等の施工後に複層ガラスが夏季に日光をうけて外気温が上がった際、ガラス板がずれてしまうという問題がある。

【0004】特開平10-88096号公報には、シラン化合物をグラフトした無定形ポリ- $\alpha$ -オレフィンを含む接着剤が提案されており、ガラス、セラミックス、金属等への高い接着力、強力な凝集力、高い熱安定性を有することが開示されている。しかし、複層ガラスのシーリング材且つスペーサーとして用いることにより、金属製のスペーサーを用いずに、複層ガラスを製造する、複層ガラスのワンショットシールに用いることに関しては検討されていない。また単独では、可とう性を有さないため、複層ガラスの熱変形等に追従できず、シーリング剤としては使用しにくい。

- 【0005】また、これまで、熱可塑性樹脂連続相中に少なくとも一部が動的に架橋されたゴム組成物からなる分散相を有する、いわゆる熱可塑性エラストマー組成物を、自動車用ランプや複層ガラスのシール部に用いることが検討されてきている。しかし、これらの熱可塑性エラストマー組成物からなるシール部と、ガラスとの間に
- 40 接着樹脂層を設けなければ強固な接着力が得られないという問題がある。

【0006】このように、現状では、二次シールを用いずに、一次シールのみで接着性、形状維持性、成形性などの特性をすべて満足する複層ガラス用シーリング材は知られていない。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、複層ガラスにおいて、金属スペーサーや二次シール材を必要とせず、また、プライマーや接着樹脂の使用を必要としない、シール材として特に有用なシーリング材組成物、

および、該シーリング材組成物をシール材として用いることで、製造工程が大幅に簡略化される複層ガラスを提供することである。

【0008】

【課題を解決するための手段】すなわち、本発明は、連続相が、加水分解性シリル基を有するシラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンであり、分散相が、熱可塑性樹脂および／またはエラストマーであるシーリング材組成物を提供する。また、前記組成物の透湿度が  $200 \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ h}$  以下 ( $30 \mu\text{m}$  厚さ) であるシーリング材組成物である。

【0009】また、前記分散相が、熱可塑性樹脂連続相中に、少なくとも一部が動的に架橋されたエラストマー組成物からなる分散相を有する熱可塑性エラストマー組成物であるのが好ましい。

【0010】また、前記シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンと前記熱可塑性樹脂および／またはエラストマーとの重量比が、 $30:70 \sim 70:30$  であるのが好ましい。

【0011】また、前記シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンが、ポリオレフィンに対するシラン化合物のグラフト率が  $0.1 \sim 10$  重量% であるのが好ましい。

【0012】上記シーリング材組成物は、さらに吸湿剤を含むのが好ましい。

【0013】さらに、本発明は、上記シーリング材組成物のいずれかをシーリング材且つスペーサーとして用いた複層ガラスを提供する。

【0014】

【発明の実施の形態】以下、本発明を詳細に説明する。本発明のシーリング材組成物（以下、本発明の組成物と記す）は、加水分解性シリル基を有するシラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンと、熱可塑性樹脂および／またはエラストマーとを含み、シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンが連続相であり、熱可塑性樹脂および／またはエラストマーが分散相であって、連続相中に分散相が均一に分散された形態をなすものである。また、該組成物の透湿度は、 $200 \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ h}$  以下 ( $30 \mu\text{m}$  厚さ) である。

【0015】<連続相としての加水分解性シリル基を有するシラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィン>本発明に用いられる加水分解性シリル基を有するシラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンは、少なくとも1個のオレフィン系二重結合を有し、かつ、1～3個の直接ケイ素と結合しているアルコキシ基を有するシラン化合物を、十分に無定形のポリ- $\alpha$ -オレフィンに、グラフトして得られる樹脂である。

【0016】十分に無定形のポリ- $\alpha$ -オレフィンは、完全に無定形であるか、またはわずかに結晶部分を有してもよい。一般に、レントゲン回折を介して測定される

結晶化度が、25%を越えないのが好ましい。

【0017】十分に無定形のポリ- $\alpha$ -オレフィンは、ホモポリマーであってもコポリマーであってもよく、ホモポリマーとしては、例えば、アタクチックポリプロピレン (APP)、アタクチックポリブテン-1 等が挙げられ、または以下のモノマー組成を有するコポリマーまたはターポリマーであってもよい；4～10個の炭素原子を有する $\alpha$ -オレフィン0～95重量%（好ましくは3～95重量%）、プロピレン5～100重量%（好ましくは5～97重量%）、および、エチレン0～20重量%。これらの、十分に無定形のポリ- $\alpha$ -オレフィンの中で、上記組成を有するコポリマーまたはターポリマーが好ましい。

【0018】上記無定形のポリ- $\alpha$ -オレフィンにグラフトするシラン化合物（シランカップリング剤）は、少なくとも1個のオレフィン系二重結合を有し、かつ、直接ケイ素と結合している3個のアルコキシ基を有するのが好ましく、具体的には、ビニルトリメトキシシラン (VTMO)、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリス(2-メトキシエトキシ)シラン、3-メタクリルオキシプロピルトリメトキシシラン (MEMO;  $\text{H}_2\text{C}=\text{C}(\text{CH}_3)\text{COO}(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_3$ )、3-メタクリルオキシプロピルトリエトキシシラン、ビニルジメチルメトキシシラン、ビニルメチルジブトキシシラン等が挙げられる。

【0019】十分に無定形のポリ- $\alpha$ -オレフィンに対し、上記不飽和シラン化合物のグラフト率が、 $0.1 \sim 10$  重量%が好ましく、 $0.5 \sim 5$  重量%がより好ましい。

【0020】上記不飽和シラン化合物は十分に無定形のポリ- $\alpha$ -オレフィンに、従来公知の方法によりグラフトすることができ、例えば溶剤中で、または熔融中でグラフトすることができる。

【0021】シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンは水により架橋されるが、この架橋は被着体の特性に応じて、空気中の水蒸気、蒸気処理もしくは温水処理により、または被着体に含有されている水分により行われる。シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンは、特に表面にOH基を有する被着体に関して著しく強力な接着力を示す。

【0022】シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンの架橋時には、架橋速度を向上するために、ジブチルスズジラウレートなどの有機スズ化合物といった架橋促進剤を添加することができる。このような架橋促進剤の配合量は、シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンに対し、 $0.001 \sim 20$  重量%が好ましく、 $0.01 \sim 5$  重量%がより好ましい。

【0023】シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンには、接着力、初期接着作用、粘度、硬度、弾性、熱安定性、酸化安定性等を調整するために、本発

明の目的を損なわない範囲で、添加剤、例えば、接着樹脂、可塑剤、熱安定剤、光安定剤、蛍光増白剤、帯電防止剤、滑剤、粘着防止剤、核剤、充填剤、染料、顔料、難燃剤等を添加することができる。

【0024】＜分散相としての熱可塑性樹脂＞本発明の組成物の分散相である熱可塑性樹脂としては、水蒸気透過率が、 $300 \times 10^{-13} \text{ cm}^3 \cdot \text{cm} / \text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{Pa}$ 以下の熱可塑性樹脂が好ましい。このような熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリオレフィン系樹脂（例えば高密度ポリエチレン（HDPE）、低密度ポリエチレン（LDPE）、超高分子量ポリエチレン（UHMWPE）、アイソタクチックポリプロピレン、シンジオタクチックポリプロピレン、エチレンプロピレン共重合体樹脂）、スチレン系熱可塑性エラストマー（スチレン-イソブチレン-スチレン共重合体）；ポリアミド系樹脂（例えばナイロン6（N6）、ナイロン66（N66）、ナイロン46（N46）、ナイロン11（N11）、ナイロン12（N12）、ナイロン610（N610）、ナイロン612（N612）、ナイロン6/66共重合体（N6/66）、ナイロン6/66/610共重合体（N6/66/610）、ナイロンMXD6（MXD6）、ナイロン6T、ナイロン6/6T共重合体、ナイロン66/PP共重合体、ナイロン66/PPS共重合体）；ポリエステル系樹脂（例えばポリブチレンテレフタレート（PBT）、ポリエチレンテレフタレート（PET）などの芳香族ポリエステル）；ポリエーテル系樹脂（例えばポリフェニレンオキシド（PPO）、変性ポリフェニレンオキシド（変性PPO）、ポリフェニレンサルファイド（PPS）、ポリエーテルエーテルケトン（PEEK））；ポリメタクリレート系樹脂（例えばポリメタクリル酸メチル（PMMA）、ポリメタクリル酸エチル）；ポリビニル系樹脂（例えばビニルアルコール/エチレン共重合体（EVOH）、ポリ塩化ビニリデン（PVDC）、塩化ビニリデン/メチルアクリレート共重合体）；フッ素系樹脂（例えばポリフッ化ビニリデン（PVDF）、ポリクロロフルオロエチレン（PCTFE））、ポリアクリロニトリル樹脂（PAN）などを挙げることができる。また、これらを適宜組み合わせてもよい。

【0025】これらの中でも、得られる本発明の組成物の成形加工性が良好で、かつ、本発明の組成物を後述する複層ガラスのシーリング材且つスペーサーとして用いた場合に外気温等に対する耐熱変形性が良好であり、水蒸気透過性の吸水による低下を最小化できるなどの理由から、熱変形温度が50℃以上のポリオレフィン系樹脂、ポリエステル系樹脂、ポリエーテル系樹脂、フッ素系樹脂が好適に使用できる。

【0026】＜分散相としてのエラストマー＞本発明の組成物の分散相であるエラストマーとしては、水蒸気透過率が、 $300 \times 10^{-13} \text{ cm}^3 \cdot \text{cm} / \text{cm}^2 \cdot \text{sec}$

$\text{cm} \cdot \text{Pa}$ 以下のエラストマーを用いる。例えば、還元NR、エチレンプロピレンゴム（EPDM、EPM）、ポリイソブチレン、IIR、Br-IIR、CI-IIR、パラメチルスチレンとポリイソブチレンの共重合体のハロゲン化物（X-IPMS）、エチレン-酢酸ビニルゴム（EVA）、塩素化ポリエチレン、クロロスルホン化ポリエチレン、アクリロニトリルブタジエンゴムおよびその水添物、ヒドリングム、スチレン-エチレン-ブチレン-スチレン系ブロック共重合体（SEBS）、スチレン-イソブチレン-スチレンブロック共重合体などが挙げられる。これらの中でも、樹脂との混練時の耐熱性、低水蒸気透過性の観点から、エチレンプロピレンゴム、IIR、Br-IIR、X-IPMS、スチレン-イソブチレン-スチレンブロック共重合体が好ましい。

【0027】上述の熱可塑性樹脂もしくはエラストマーには、分散性、耐熱性等の改善、およびその他の目的のために、一般的に配合される補強材、充填材、軟化剤、架橋剤、老化防止剤、加工助剤等を、必要に応じて適宜配合することができる。

【0028】本発明の組成物の分散相は、上記熱可塑性樹脂とエラストマーの両方を含有してもよい。本発明の組成物の分散相が、上記熱可塑性樹脂とエラストマーとを含む場合、熱可塑性樹脂とエラストマー組成物との割合には特に制限はないが、分散層として均一に分散するという理由から、相溶性であるか、相分離をおさえるために、臨界面張力差 $\Delta\gamma$ が、 $|\Delta\gamma| \leq 3$ であることが好ましい。

【0029】＜本発明の組成物の連続相と分散相の重量比率＞本発明の組成物中、前述の連続相としてのシラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンと、分散相としての上記熱可塑性樹脂および/またはエラストマーとの重量比が、シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィン：熱可塑性樹脂および/またはエラストマー＝30：70～70：30であるのが好ましい。この割合の臨界は、シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンと、上記熱可塑性樹脂および/またはエラストマーの体積比率と粘度比率とによる。さらに、シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンと、上記熱可塑性樹脂および/またはエラストマーとの重量比は、本発明の組成物の接着性の観点から、50/50～70/30がより好ましい。

【0030】本発明の組成物は、シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンが連続相であり、熱可塑性樹脂および/またはエラストマーが分散相であって、連続相中に分散相が均一に分散された形態をなすものである。このような形態をとるためには、シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンと、上記熱可塑性樹脂および/またはエラストマーの体積比の配合比率を制御して、シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオ

レフィンと、上記熱可塑性樹脂および/またはエラストマーのそれぞれの混練温度における熔融粘度との関係が、下記関係式(1)で求められる $\alpha$ の値が1未満であ\*

$$\alpha = (\phi_o / \phi_m) \times (\eta_m / \eta_o)$$

(式中、

$\phi_o$  : 分散相(ドメイン相)、すなわち、上記熱可塑性樹脂および/またはエラストマー相の体積分率

$\phi_m$  : 連続相(マトリックス相)、すなわち、シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィン相の体積分率

$\eta_o$  : シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンと、上記熱可塑性樹脂および/またはエラストマーとの混練時の温度および剪断速度条件における、分散相(熱可塑性樹脂および/またはエラストマー)の熔融粘度(poise)

$\eta_m$  : シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンと、上記熱可塑性樹脂および/またはエラストマーとの混練時の温度および剪断速度条件における、連続相(シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィン)の熔融粘度(poise)

【0032】この $\alpha$ の値が1以上であると、分散構造は逆転し、シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンが分散相となってしまうおそれがある。

【0033】本発明において、熔融粘度とは、混練加工時の任意の温度における各成分の熔融粘度をいう。重合体成分の熔融粘度は、温度、剪断速度( $\text{sec}^{-1}$ )および剪断応力に依存して変化するため、一般には、熔融状態にある任意の温度、特に、混練時の温度領域において、細管中に熔融状態の重合体成分を流し、応力と剪断速度を測定して、下記式にしたがって求められる値である。

【0034】

【数1】

$$\eta = \sigma / \dot{\gamma}$$

(式中、 $\sigma$ : 剪断応力、 $\dot{\gamma}$ : 剪断速度) ... (2)

【0035】なお、熔融粘度の測定には、例えば、東洋精機社製キャピラリーレオメーターキャピログラフ1Cを使用することができる。

【0036】<吸湿剤>本発明の組成物は、吸湿剤を含有しても良い。本発明の組成物を、複層ガラスのシーリング材、あるいはスペーサー、特にシーリング材且つスペーサーとして用いる場合、吸湿剤を含有するのが好ましい。ここで、シーリング材且つスペーサーとは、複層ガラスの対向するガラス板周端部間に、複層ガラスの空気層の厚みを取るために配置されるスペーサーとして用い、該スペーサーとガラス板の間にはシーリング材を打設することなく、本発明の組成物をガラス板に圧着して、空気層を外気から遮断するシール材としても用いることをいう。すなわち、本発明の組成物は、スペーサー

\* るように調整する。

【0031】

(1)

としての役割と、シーリング材としての役割とを同時に果たしている。なお、本発明の組成物を、複層ガラスのシーリング材として用いて他のスペーサーを用いてもよいし、スペーサーとして用いて他のシーリング材を用いてもよい。

10 【0037】本発明の組成物に吸湿剤を含有することで、本発明の組成物を複層ガラスのシーリング材且つスペーサーとして用いると、複層ガラス構造内の空気層に含まれる湿気を吸着し、空気層内を乾燥し、また、複層ガラス外部から侵入する水分を吸収し、空気層に封入される空気露点の上昇を防止することができる。なお、複層ガラスにおける露点とは、複層ガラスの内面に、目視で結露が認められる最高温度である。複層ガラスの吸湿剤としては、一般に複層ガラスの金属製スペーサー等に充填される吸湿剤を使用することができ、例えば、合成ゼオライト、シリカゲル、アルミナ等が挙げられる。吸湿剤の配合量は、本発明の組成物のポリマー成分(シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンと、熱可塑性樹脂および/またはエラストマーとの総和。)100重量部に対し、10~70重量部が好ましい。この範囲であれば、得られる本発明の組成物が吸湿性に優れるからである。

20 【0038】<その他の添加剤>本発明の組成物には、流動性や耐熱性、物理的強度、コスト等の改善のため、本発明の目的を損なわない範囲で、タルク、炭酸カルシウム、マイカ、カーボンブラック等の充填剤; ロジンエステル、クマロン樹脂等の粘着付与剤、老化防止剤、熱安定剤、酸化防止剤、加工助剤等の添加剤を加えることもできる。さらに、熱可塑性樹脂組成物には、着色等を目的として、無機顔料、有機顔料を加えることもできる。

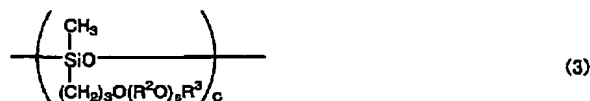
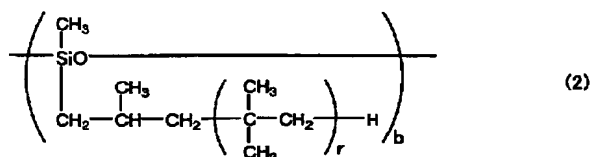
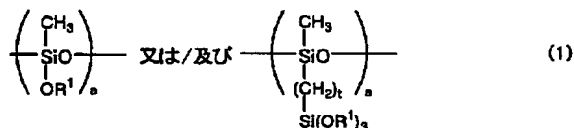
30 【0039】本発明の組成物は、連続相である非結晶性ポリオレフィンがシラン化合物をグラフトしているのので、強力な接着力を示すが、特に、ガラスとの接着性を向上させるために、接着付与剤を添加することができる。接着付与剤としては、ビニルシラン、メタクリルシラン、アミノシラン、エポキシシラン、メルカプトシラン等のシランカップリング剤、または、マレイン酸基、カルボン酸基、水酸基、エポキシ基等を有するポリマーを用いることができる。例えば、マレイン酸変性ポリエチレン、マレイン酸変性ポリプロピレン、マレイン酸変性エチレンエチルアクリレート、エポキシ変性スチレンブタジエン共重合体、エポキシ変性エチレン酢酸ビニル共重合体、エチレン酢酸ビニル共重合体およびそのケン化物等である。

50 【0040】また、本発明の組成物には、相溶化剤を配

合しても良い。系に相溶化剤を混合することにより、連続相であるシラン化合物をグラフトした非結晶化ポリオレフィンと、分散相である熱可塑性樹脂および／またはエラストマーとの化学的相溶性が異なる場合に、両者を安定化させることができ、熱可塑性樹脂および／またはエラストマーを微細分散化させるという効果を得ることが出来る。相溶化剤としては、一般的に連続相成分、分散相成分の両方または片方の構造を有する共重合体、あるいは連続相成分または分散相成分と反応可能なエポキシ基、カルボキシル基、カルボニル基、ハロゲン基、アミノ基、オキサゾリン基、水酸基、シリル基等を有した共重合体の構造を有するものが挙げられる。これらは混合される樹脂成分とエラストマー成分の種類によって選\*

\* 定することができる。汎用のもので、スチレン・エチレン・ブチレン・スチレン系ブロック共重合体（SEBS）およびそのマレイン酸変性物、EPDM、EPM およびそれらのマレイン酸変性物、EPDM/スチレンまたはEPDM/アクリロニトリルグラフト共重合体およびそのマレイン酸変性物、スチレン/マレイン酸共重合体等を挙げることができる。また相溶化剤として、特開平 11-106512 に記載される変性ポリシロキサンを用いる事もできる。すなわち下記式（1）と（2）、または（1）と（3）のシロキサン構造を有するポリシロキサンが挙げられる。

【化 1】



（式中、 $\text{R}^1$  は、炭素数 1～6 のアルキル基または炭素数 1～21 のアシル基、 $\text{R}^2$  は、炭素数 2～4 のアルキレン基および  $\text{R}^3$  は、1 価の炭化水素基を表し、 $a$  は 1～200、 $b$  は 1～200、 $c$  は 1～200、 $t$  は 2 または 3、 $r$  は 1～100 および  $s$  は 1～100 である。）

相溶化剤を配合する場合、その配合量には特に限定はなく、好ましくはポリマー成分（シラン化合物グラフトした非結晶化ポリオレフィンと、熱可塑性樹脂および／またはエラストマーとの総和）100 重量部に対して 0.1～10 重量部の割合となる量である。

【0041】本発明の組成物の調製は、予め、シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンと、上述の熱可塑性樹脂および／またはエラストマーとを、2 軸混練機や、ニーダー又はニーダルーダー等の混練機に供給して熔融混練し、連続相を形成するシラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィン中に、熱可塑性樹脂および／またはエラストマーを分散相として分散させるこ

とによって行う。シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィン、または、熱可塑性樹脂および／またはエラストマーへの各種配合剤の添加は、上記の混練操作中に行ってもよいが、混練の前に予め混合しておくことが好ましい。

【0042】シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンと、上述の熱可塑性樹脂および／またはエラストマーの混練に使用する混練機は、特に限定されず、例えば、スクリュウ押出機、ニーダ、バンバリーミキサー、2 軸混練押出機等を用いることができる。2 種類以上の混練機を使用し、順次混練してもよい。熔融混練の条件として、温度はシラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンが溶融する温度以上であればよい。

【0043】次に、本発明の組成物を、混練押出機から、ストランド状に押し出して、冷却後、樹脂用ベレタイザーでベレット状とするか、押し出し物をリボン状にして取り出し、その後、成形を行うこともできる。また、調整された本発明の組成物を、複層ガラスのシーリ

ング材として直接、複層ガラスのガラス板周縁端部間とすでに配置されたスペーサーとにより囲まれた空隙に打設、充填してもよい。あるいは、調整された本発明の組成物を押出成形、射出成形等によってスペーサーの形状に成形してもよい。この場合、成形機から出た高温の本発明の組成物を用いると、ガラス板とスペーサーとの間の接着性が高くなるので好ましい。

【0044】＜分散相としての熱可塑性エラストマー組成物＞本発明の組成物1は、図1に示すように、シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィン相からなる連続相2中に分散している分散相3が、さらに、熱可塑性樹脂連続相4中に、少なくとも一部が動的に架橋されたエラストマーを分散相5とする、海島構造をとる熱可塑性エラストマー組成物であってもよい。

【0045】本発明の組成物の分散相が、上記熱可塑性エラストマー組成物である場合、分散相中の連続相を構成する熱可塑性樹脂と、分散相中の分散相を構成するエラストマーとの組み合わせは、特に限定されず、前述した＜分散相としての熱可塑性樹脂＞から選ばれる1種以上の熱可塑性樹脂と、前述した＜分散相としてのエラストマー＞から選ばれる1種以上のエラストマーのそれぞれとを組み合わせ用いることができる。

【0046】本発明の組成物の分散相が、海島構造をとる熱可塑性エラストマー組成物である場合、含有される熱可塑性樹脂とエラストマー組成物との割合には、特に制限はないが、好ましくは重量比で熱可塑性樹脂／エラストマー組成物＝25／75～90／10であり、より好ましくは、30／70～80／20である。この割合の臨界は熱可塑性樹脂とエラストマー組成物の体積比率と粘度比率とによる。

【0047】熱可塑性樹脂とエラストマー組成物を、溶融状態で混練して、連続相が熱可塑性樹脂、分散相がエラストマー組成物である、目的の分散構造の熱可塑性エラストマー組成物を得るには、前述の、海島構造を与える関係式(1)に従って、式(1)の連続相(マトリックス相)を熱可塑性樹脂、分散相(ドメイン相)をエラストマー組成物において、熱可塑性樹脂とエラストマー組成物の体積比の配合比率を制御し、熱可塑性樹脂とエラストマー組成物のそれぞれの混練温度における溶融粘度との関係が、前述の関係式(1)で求められる $\alpha$ の値が1未満であるように調整する。

【0048】なお、上述の熱可塑性エラストマー組成物内の分散構造においては、関係式(1)の、 $\phi_0$ 、 $\phi_m$ 、 $\eta_0$ 、 $\eta_m$ は、下記ようになる。

$\phi_0$ ：エラストマー組成物の体積分率

$\phi_m$ ：熱可塑性樹脂の体積分率

$\eta_0$ ：熱可塑性樹脂とエラストマー組成物の混練時の温度および剪断速度条件におけるエラストマー組成物の溶融粘度 (poise)

$\eta_m$ ：熱可塑性樹脂とエラストマー組成物の混練時の温

度および剪断速度条件における熱可塑性樹脂の溶融粘度 (poise)

【0049】この $\alpha$ の値が1以上であると、熱可塑性樹脂とエラストマー組成物の分散構造は逆転し、エラストマー組成物が連続相となってしまうおそれがある。上記範囲内で混練することにより、混練性が安定し、エラストマー比率を広く制御することが可能で、柔軟で高破断伸びである熱可塑性エラストマー組成物を得ることが出来る。

【0050】また、 $\eta_0/\eta_m$ は、4.0以下が好ましく、3.7以下であるのがより好ましい。この範囲であると、エラストマー組成物が、熱可塑性樹脂中に、0.1 $\mu\text{m}$ ～数10 $\mu\text{m}$ 程度の大きさの粒子として分散される。

【0051】本発明の組成物の分散相としての、上述の熱可塑性エラストマー組成物には、本発明の目的を損なわない範囲で、充填剤、老化防止剤、熱安定剤、酸化防止剤、加工助剤、相溶化剤、無機顔料、有機顔料等の添加剤を加えることもできる。これらの添加剤としては、前述の、本発明の組成物の分散相に配合することの出来る添加剤として記載したものと同様の添加剤を例示することが出来る。また、分散相としての熱可塑性エラストマー組成物の動的架橋に用いられる加硫剤、加硫助剤、加硫条件等は、使用するエラストマー組成物の組成に応じて適宜決定すればよく、特に限定されない。加硫剤としては、一般的なゴム加硫剤(架橋剤)を用いることができる。

【0052】ゴム加硫剤として用いられるイオウ系加硫剤の具体例としては、粉末イオウ、沈降性イオウ、高分散性イオウ、表面处理イオウ、不溶性イオウ、ジモルフォリンジサルファイド、アルキルフェノールジサルファイド等が例示される。このイオウ系加硫剤を用いる場合には、その使用量は、例えば、0.5～4 phr (エラストマー成分100重量部当りの重量部、以下、同じ)の割合となる量が好ましい。

【0053】また、有機過酸化物系の加硫剤としては、ベンゾイルパーオキサイド、*t*-ブチルヒドロパーオキサイド、2,4-ジクロロベンゾイルパーオキサイド、2,5-ジメチル-2,5-ジ(*t*-ブチルパーオキシ)ヘキサン、2,5-ジメチルヘキサン-2,5-ジ(パーオキシルベンゾエート)等が例示される。この有機過酸化物系の加硫剤を用いる場合には、その使用量は、例えば、1～15 phrの割合となる量が好ましい。

【0054】さらに、フェノール樹脂系の加硫剤としては、アルキルフェノール樹脂の臭素化物や、塩化スズ、クロロブレン等のハロゲンドナーとアルキルフェノール樹脂とを含有する混合架橋系等が例示される。このフェノール樹脂系の加硫剤を用いる場合には、その使用量は、例えば、1～20 phrの割合となる量が好まし



い。

【0055】また、その他の加硫剤として、亜鉛華（5 phr程度）、酸化マグネシウム（4 phr程度）、リサーチ（10～20 phr程度）、p-キノンジオキシム、p-ジベンゾイルキノンジオキシム、テトラクロロ-p-ベンゾキノン、ポリ-p-ジニトロソベンゼン（2～10 phr程度）、メチリンジアニリン（0.2～10 phr程度）等が例示される。

【0056】また、必要に応じて、加硫促進剤を添加してもよい。用いられる加硫促進剤としては、アルデヒド・アンモニア系、グアニジン系、チアゾール系、スルフェンアミド系、チウラム系、ジチオ酸塩系、チオウレア系等の一般的な加硫促進剤を、例えば、0.5～2 phr程度用いればよい。

【0057】具体例として、アルデヒド・アンモニア系加硫促進剤としては、ヘキサメチレンテトラミン等が；グアニジン系加硫促進剤としては、ジフェニルグアニジン等が；チアゾール系加硫促進剤としては、ジベンゾチアジルスルファイド（DM）、2-メルカプトベンゾチアゾールおよびそのZn塩、シクロヘキシルアミン塩等が；スルフェンアミド系加硫促進剤としては、シクロヘキシルベンゾチアジルスルフェンアミド（CBS）、N-オキシジェチレンベンゾチアジル-2-スルフェンアミド、N-tert-ブチル-2-ベンゾチアゾールスルフェンアミド、2-（チモルポリニルジチオ）ベンゾチアゾール等が；チウラム系加硫促進剤としては、テトラメチルチウラムジサルファイド（TMTD）、テトラエチルチウラムジサルファイド、テトラメチルチウラムモノサルファイド（TMTM）、ジペンタメチレンチウラムテトラサルファイド等が；

【0058】ジチオ酸塩系加硫促進剤としては、Zn-ジメチルジチオカーバメート、Zn-ジエチルジチオカーバメート、Zn-ジ-n-ブチルジチオカーバメート、Zn-エチルフェニルジチオカーバメート、Tc-ジエチルジチオカーバメート、Cu-ジメチルジチオカーバメート、Fe-ジメチルジチオカーバメート、ビベコリンビベコリルジチオカーバメート等が；チオウレア系加硫促進剤としては、エチレンチオウレア、ジエチルチオウレア等が；それぞれ開示される。また、加硫促進剤として、一般的なエラストマー用助剤を併せて用いることができ、例えば、亜鉛華（5 phr程度）、ステアリン酸やオレイン酸およびこれらのZn塩（2～4 phr程度）等を用いることができる。

【0059】本発明の組成物の分散相としての、熱可塑性エラストマー組成物の調製は、予め、分散相の中の連続相となる熱可塑性樹脂成分と、分散相の中の分散相となる未加硫のエラストマー組成物とを、2軸混練機等の混練機に供給して熔融混練し、熱可塑性樹脂成分中にエラストマー組成物を分散させ、次に、混練下に加硫剤を添加して、エラストマー組成物を動的に架橋させること

によって行う。加硫剤等の各種添加剤の配合は、上記の混練操作中に行ってもよいが、混練の前に予め混合しておくことが好ましい。このとき、加硫剤、加硫助剤も予めエラストマー組成物中に混合しておき、熱可塑性樹脂とエラストマー組成物を混練中に、エラストマー組成物の架橋を同時に行うこともできる。

【0060】分散相としての熱可塑性エラストマー組成物を調整するために、熱可塑性樹脂とエラストマー組成物の混練に使用する混練機は、特に限定されず、前述した本発明の組成物の混練に使用できる混練機と同様のものを例示することが出来る。特に、熱可塑性エラストマー組成物の動的架橋には、2軸混練押出機を用いるのが好ましい。また、2種類以上の混練機を使用し、順次混練してもよい。

【0061】熔融混練の条件として、温度は熱可塑性樹脂が熔融する温度以上であればよい。また、混練時の剪断速度は500～8000 sec<sup>-1</sup>であるのが好ましい。混練の合計時間は500秒～5000秒、また、添加後の加硫時間は15秒～5分であるのが好ましい。次に、調製された熱可塑性エラストマー組成物は、混練押出機から、ストランド状に押し出して、水等で冷却後、樹脂用ベレタイザーでベレット状とするか、リボン状に押し出して、取り出す。このようにして得られる上述の熱可塑性エラストマー組成物を、前述した分散相としての熱可塑性樹脂および/またはエラストマーの代わりに用いて、本発明の組成物を調整することが出来る。

【0062】上述の、本発明の組成物の分散相としての熱可塑性エラストマー組成物には、市販品を利用することが出来、例えば、FG-03、FG-07（ともに、横浜ゴム（株）製）が例示される。

【0063】上述の構成をとる本発明のシーリング材組成物の透湿度は、30 μm厚さで、200 g/m<sup>2</sup>・24 h以下である。また、ガラスとの接着性に優れ、耐水蒸気透過性にも優れる。また、分散相として含有する特定の熱可塑性樹脂とエラストマーとが、上述のようにエラストマーが熱可塑性樹脂中に微細に分散した状態で存在する本発明の組成物は、耐熱変形性に優れる。シーリング材組成物の連続相として含有されるシラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンが、非結晶性ポリオレフィンに対する不飽和シラン化合物のグラフト率が0.1～10重量%である本発明の組成物は、特にガラス等への接着性に特に優れる。吸湿剤を含有する本発明の組成物は、さらに吸湿性に優れる。

【0064】次に、本発明のシーリング材組成物を、シーリング材且つスペーサーとして使用した本発明の複層ガラスについて説明する。図2は、本発明の複層ガラスのガラス板に垂直な方向での概略断面図である。図2に示す複層ガラス10は、対向する2枚のガラス板6が、間に所定の体積を有する空気層8を形成するよう、2枚のガラス板6間の間隔を決めるスペーサー7を、2枚の

ガラス板6間に有する。このスペーサー7はアルミ等の金属を用いて別にシーリング材として本発明の組成物を設けても良いが、好ましくは、上述の本発明の組成物よりなる。本発明の組成物よりなるスペーサーの硬度は、JIS A硬度で、30～80であるのが好ましい。この範囲であれば、空気層8の温度が上昇してガラス板とスペーサーの接着面に応力がかかる場合でも、接着力が強固な場合にガラスが破損したり、接着力が不十分な場合に、ガラス板とスペーサーとが剥離することを回避できる。また、この範囲であれば、ガラス板の自重により複層ガラスが変形することもない。

【0065】ガラス板6の間隔は、通常約6mm、あるいは約12mmである。図2では、ガラス板6は2枚であるが、2枚に限らず、2枚以上であっても良く、必要に応じて決めることができる。図2に示す本発明の複層ガラスの例では、スペーサー7が同時にシーリング材として2枚のガラス板6を外気からシールして保持している。ここで、スペーサー7は、一次シール材、二次シール材等を用いずとも、外部からの水分の浸入を防ぐと共に、2枚のガラス板6を所定の間隔に保持するスペーサーとシーリング材としての役割を果たしている。

【0066】本発明の複層ガラスのガラス板6としては、建材、車両等に用いられるガラス板を使用することができ、例えば、通常窓等に使用されるガラス、強化ガラス、金属網入りガラス、熱線吸収ガラス、熱線反射ガラス、有機ガラス等を用いることができる。また、その厚みは、適宜決められる。

【0067】本発明の複層ガラスは、基本的には、機械と固定された2枚の平行なガラス板6の間に、押出機に連結したノズル等で本発明の組成物を押し出しながら接着を行うことにより作製していく。場合によっては、一方のガラス板面に本発明の組成物を押し出しておき、冷却しないうちにもう一方のガラス板を圧着して作製することもできる。なお、スペーサーを形成する本発明の組成物は、スペーサーとして成形してガラス板に配設される場合でも、押出機から直接ガラス板間に吐出される場合でも、混練後の高温の状態であるものを用いるのが好ましい。スペーサーとガラス板との間により強固な接着性が得られるからである。

【0068】このような構成をとる本発明の複層ガラスは、従来の金属製スペーサーとシーリング材とを用いて製造される複層ガラスと比べて、製造工程が大幅に削減されるため、製造が非常に簡便である。また、本発明の組成物を、シーリング材且つスペーサーとして使用するので、従来の2液型のシーリング材のように硬化までに長時間を要することがなく生産性が高い。本発明の組成物は、上述したように耐水蒸気透過性に優れるので、本発明の複層ガラスは、露点が高い。さらに、本発明の組成物は耐熱変形性に優れるので、ガラス板が外気温等により高温になっても、ガラス板がずれて複層ガラスが変

形することがない。また、吸湿材を配合した本発明の組成物を使用する複層ガラスでは、空気層が乾燥したまま保持される。

【0069】

【実施例】以下に実施例を挙げ、本発明のシーリング材組成物についてさらに詳細に説明する。

【0070】(実施例1～9、比較例1～5)第1表に示す樹脂、配合剤を、第1表に示す配合比率(単位は重量部)で熔融混練した。厚さ1mmのシートとして、20mm巾のリボン状に加工した。次に、一辺が300mmの角ガラス2枚を6mmの間隔をもたせて平行に固定し、その間の周縁部に上記材料を一軸押出機に供給してノズルで押し出し成形しながら配設し、複層ガラスを作成した。また、プレス成形にて30μmのフィルム状に成形し、透湿度の測定に供するサンプルとした。

【0071】(1)透湿度

図2に示されるようなステンレス製のカップ20に、カップ容量の半分の水22を入れる。カップ20の上部開口を、実施例1～9、比較例1～5で得られた試料シートを切断して得られた試料シート24(30μm厚)で覆い、その上部に焼結金属板26をのせ、固定部材28を介して、ボルト30とナット32で締める。このカップを25℃の雰囲気下に放置し、1ヶ月後に全体の重量を測定し、その減少量を24時間当たり換算して算出し、下記式で透湿度を算出した。

$$\text{透湿度}[(\text{g}/\text{m}^2 \cdot 24\text{hr})] = M / (T \cdot A)$$

式中、A=透過面積[m<sup>2</sup>]

T=試験時間[day]

M=減少重量[g]

なお、ここで測定された透湿度と水蒸気透過率との関係は、

$$\text{水蒸気透過率}[\text{cm}^3 \cdot \text{cm}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{atm}] = 1.767 \times 10^9 \times \text{透湿度}[\text{g}/\text{m}^2 \cdot 24\text{hr}] \times \text{厚さ}[\text{mm}]$$

である。

【0072】(2)ガラス板の非錫面への接着試験  
ガラス板製造時に、高温のガラス板を冷却させるために熔融錫に接触させた面ではない面(ガラス板の非錫面という)を用いて、ガラスに対する接着試験を行った。

① 実施例、比較例で得られた樹脂組成物を、プレス成形に厚さ4mmのフィルム状に成形し、ガラス板の非錫面に塗布して、150℃で30分放置した。なお、非錫面は、錫に接触した面より、接着困難なので、接着試験の被着体として、非錫面を選択した。表中、濡れ性ありとは、樹脂組成物をガラス面に均一に塗布できることを表す。濡れ性なしとは、樹脂組成物をガラス面に均一に塗布できないことを表す。濡れ性がない場合、樹脂組成物を持ってガラス板を持ち上げると、樹脂組成物からガラスが剥がれて落ちてしまった。

【0073】② 実施例、比較例で得られた樹脂組成物

を、プレス成形に厚さ4mmのフィルム状に成形し、ガラス板の非錫面に塗布して、22℃、相対湿度55%で11日放置した。ついで、樹脂組成物を手で剥離した。＊

第1表 (その1)

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	比較例1	比較例2	比較例3
シラガフトした非結晶性ポリオレフィン 熱可塑性エラストマー組成物 ①	30	50	30	50	30	60	100		100
熱可塑性エラストマー組成物 ②					70	50			
熱可塑性樹脂	70	50	70	25				100	
樹脂改質剤 ①				25					
樹脂改質剤 ②			20						
相容化剤				10					
水蒸気透過性 (g/m <sup>2</sup> ・24hr)	65	55	150	80	60	40	5	30	80
<ガラス板の非錫面への接着試験>									
非錫面に各シート4mmをのせて 150℃で30分放置	濡れ性 あり	濡れ性 あり	濡れ性 あり	濡れ性 あり	濡れ性 あり	濡れ性 あり	濡れ性 なし	濡れ性 なし	濡れ性 あり
20℃×55%に11日放置後の手剥離	接着	接着	接着	接着	よく接着	よく接着	接着せず	接着せず	接着*1

\*1 流動するためスペーサとして機能せず。

【表2】

第1表 (その2)

	実施例7	実施例8	実施例9	比較例4	比較例5
シラガフトした非結晶性ポリオレフィン 熱可塑性エラストマー組成物 ①	30	50	70	20	90
熱可塑性エラストマー組成物 ②					
熱可塑性樹脂	70	50	30	80	10
樹脂改質剤 ①					
樹脂改質剤 ②					
相容化剤					
水蒸気透過性 (g/m <sup>2</sup> ・24hr)	16	15	25	15	50
<ガラス板の非錫面への接着試験>					
非錫面に各シート4mmをのせて 150℃で30分放置	濡れ性 あり	濡れ性 あり	濡れ性 あり	濡れ性 なし	濡れ性 あり
20℃×55%に11日放置後の手剥離	よく接着	よく接着	よく接着	接着せず*2	接着する*3

\*2 連続相が熱可塑性樹脂。

\*3 吐出時に形状保持不可。

【0075】22℃、相対湿度55%で11日放置後に、実施例1～9で得られた樹脂組成物は、ガラス板から手剥離できず、ガラス板によく接着していた。比較例1～2で得られた樹脂組成物は、ガラス板から手剥離でき、ガラス板に接着していなかった。比較例3で得られた樹脂組成物は、ガラス板に接着したが、流動したため、複層ガラスのスペーサとして機能しなかった。比較例4で得られた樹脂組成物は、熱可塑性樹脂が連続相

であり、シラン化合物グラフトした非結晶性ポリオレフィンが分散相であったため、ガラス板に接着しなかった。比較例5で得られた樹脂組成物は、複層ガラスを作成時、ガラス板に樹脂組成物をノズルから吐出して押出し成形しながら配設したが、成形した形状を保持できず、流れてしまうために、複層ガラスのスペーサとして機能しなかった。

【0076】<表中の各成分>シラン化合物グラフトし

た非結晶性ポリオレフィン：VESTPLAST 206、ヒュールズ社製（シラン化合物グラフト率＝3重量％）

熱可塑性エラストマー組成物①：FG-03（連続相がHDPE、分散相が部分臭素化ブチルゴムを架橋したもの、相溶化剤として変性ポリシロキサンを含む。透湿度＝5 [g/m<sup>2</sup>・24h]（30μm厚さ）、横浜ゴム（株）製

熱可塑性エラストマー組成物②：FG-07（連続相がHDPE、分散相が部分臭素化ブチルゴムを架橋したもの、相溶化剤は配合していない。透湿度＝1.0 [g/m<sup>2</sup>・24h]（30μm厚さ）、横浜ゴム（株）製

熱可塑性樹脂：SBS（スチレン・イソブチレン・スチレンブロック共重合体）、カネカ社製（透湿度＝30 [g/m<sup>2</sup>・24h]（30μm厚さ））

樹脂改質剤①：OPANOL（ポリイソブチレン）、BASF社製

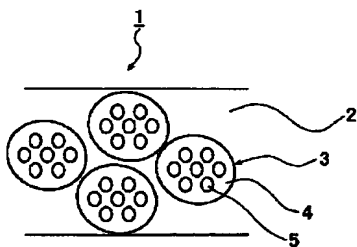
樹脂改質剤②：OUE-1000（水酸基を分子末端に有する疎水性炭化水素、（ベスポール、東亜合成社製）とTMXDIとをインデックス2で反応させて得られるウレタンプレポリマー）、横浜ゴム社製

相溶化剤：変性ポリシロキサン（シリコーン樹脂の主鎖のケイ素原子に、ポリイソブチレン側鎖、メトキシ基（あるいはエトキシ基）が結合したシリコーン樹脂）。特開平11-106512号公報に記載されている。横浜ゴム社製

【0077】

【発明の効果】本発明のシーリング材組成物は、ガラス等に対する接着性、耐水蒸気透過性に優れる。本発明のシーリング材組成物をシーリング材且つスペーサーとし＊30

【図1】



＊て使用する本発明の複層ガラスは、製造工程が、従来の複層ガラスに比べ、大幅に削減されているので非常に簡単に製造することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明のシーリング材組成物の分散相が熱可塑性エラストマー組成物である場合の、本発明の組成物の構造を表した模式図である。

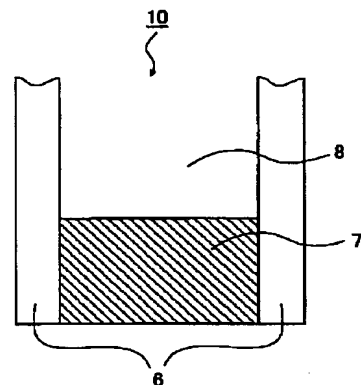
【図2】 本発明の複層ガラスの1実施例の概略断面図である。

【図3】 透湿度を測定するためのカップの断面図である。

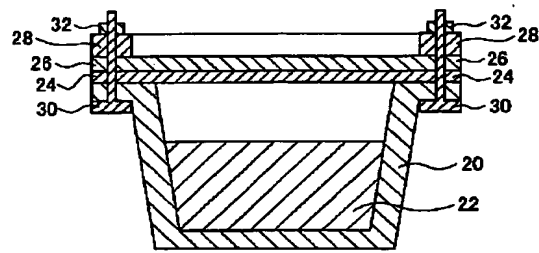
【符号の説明】

- 1 本発明のシーリング材組成物
- 2 連続相（シラン化合物がグラフトした非結晶性ポリオレフィン）
- 3 分散相（熱可塑性エラストマー組成物）
- 4 分散相中の連続相（熱可塑性樹脂）
- 5 分散相中の分散相（エラストマー組成物）
- 6 ガラス板
- 7 スペーサー
- 8 空気層
- 10 複層ガラス
- 20 カップ
- 22 水
- 24 試料シート
- 26 焼結金属板
- 28 固定部材
- 30 ボルト
- 32 ナット

【図2】



【図3】



フロントページの続き

(72)発明者 渡邊 次郎  
神奈川県平塚市追分2番1号 横浜ゴム株  
式会社平塚製造所内

F ターム(参考) 4G061 AA20 BA01 CA05 CB04 CB16  
CD02 CD22 CD25 DA32 DA43  
4H017 AA03 AA04 AB07 AB15 AB17  
AC02 AC04 AC05 AC16 AD05  
AE03  
4J002 AC073 AC113 BB00X BB03X  
BB063 BB12X BB15X BB153  
BB173 BB243 BB273 BD10X  
BD12X BE03X BG06X BN03W  
BN04W BP01X CF06X CF07X  
CH07X CH09X CL00X CN01X  
GJ02